

**Bibliographic Information**

**Preparation of isoxazole derivatives as insecticides.** Yamada, Masahiro; Kosugi, Chikako; Tomita, Masayuki; Fujita, Toshio. (Mitsubishi Kasei Corp., Japan). Jpn. Kokai Tokkyo Koho (1991), 7 pp. CODEN: JKXXAF JP 03246283 A2 19911101 Heisei. Patent written in Japanese. Application: JP 90-40301 19900221. CAN 116:123312 AN 1992:123312 CAPLUS (Copyright 2004 ACS on SciFinder (R))

**Patent Family Information**

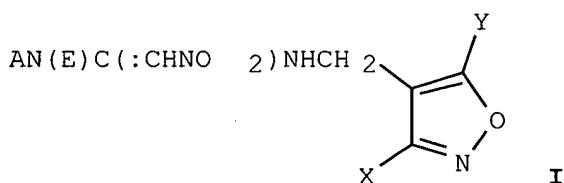
<u>Patent No.</u>	<u>Kind</u>	<u>Date</u>	<u>Application No.</u>	<u>Date</u>
JP 03246283	A2	19911101	JP 1990-40301	19900221

Priority Application

JP 1990-40301 19900221

**Abstract**

Insecticides contain isoxazoles I ( $A = C_1\text{-}4$  alkyl;  $E = H, A$ ;  $X, Y = H, C_1\text{-}6$  alkyl) as active ingredients. 4-Aminomethyl-5-methylisoxazole (0.20 g), 0.26 g N-methyl-1-methylthio-2-nitroethenamine and 2 mL H<sub>2</sub>O were heated at 50° for 6.5 h to give 0.32 g I ( $A = Y = Me, E = X = H$ ). II 20, Carplex 80 20, Kunilite 201 55, and Sorpol 8070 5 wt. parts were mixed and pulverized to give a wettable powder, which at 500 ppm I showed 100% insecticidal effect against Nilaparvata lugens larvae.



(19)日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-139921

(43)公開日 平成5年(1993)6月8日

(51)Int.Cl.  
A 01 N 47/28  
25/12  
43/50

識別記号 102  
序内整理番号 8930-4H  
6742-4H  
N 8930-4H

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 3(全 8 頁)

(21)出願番号

特願平3-295912

(22)出願日

平成3年(1991)11月12日

(71)出願人 000003986

日産化学工業株式会社

東京都千代田区神田錦町3丁目7番地1

(72)発明者 鈴木 宏一

埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470 日産  
化学工業株式会社生物科学研究所内

(72)発明者 若山 健二

埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470 日産  
化学工業株式会社生物科学研究所内

(72)発明者 梅原 利之

埼玉県南埼玉郡白岡町大字白岡1470 日産  
化学工業株式会社生物科学研究所内

(54)【発明の名称】 有害生物防除用粒剤

(57)【要約】

【構成】特定の殺虫活性成分化合物と、スルホニルウレア系除草活性化合物の1種以上とを有効成分として含有する有害生物防除用粒剤。

【効果】水田において、1回の農薬粒剤の散布で主要な水稻害虫を防除するとともに、同時に水稻雜草を長期間に渡って防除し、しかも水稻に薬害の発生しない水稻用粒剤を提供する。

## 〔特許請求の範囲〕

〔請求項1〕 1-(6-クロロ-3-ピリジルメチル)-N-ニトロイミダゾリジン-2-イリデンアミンと、スルホニルウレア系化合物の1種以上とを有効成分として含有する有害生物防除用粒剤。

〔請求項2〕 請求項1記載の有効成分と、ノビエ等に有効な除草剤活性成分の1種以上とを有効成分として含有する水田用粒剤。

〔請求項3〕 スルホニルウレア系化合物が、下記の4種の化合物のいずれかである請求項1記載の有害生物防除用粒剤。

① エチル-5-[3-(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)-ウレイドスルホニル]-1-メチルピラゾール-4-カルボキシレート。

② メチル=α(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イルカルバモイルスルファモイル)-0-トルアート。

③ 3-(4,6-ジメトキシ-1,3,5-トリアジン-2-イル)-1-[2-(2-メトキシエトキシ)-フェニルスルホニル]-ウレア。

④ 1-(2-クロロイミダゾ[1,2-a]ピリジン-3-イルスルホニル)-3-(4,6-ジメトキシ-2-ピリミジニル)ウレア。

## 〔発明の詳細な説明〕

## 【0001】

〔産業上の利用分野〕 本発明は、特定の公知の殺虫剤活性成分と特定の公知の除草剤活性成分とを有効成分として含有する新規な有害生物防除用粒剤に関するもので特に水田用粒剤に関するものである。

## 【0002】

〔従来の技術〕 近年、一年生水田雜草および多年生水田雜草の両者に有効な、広いスペクトラムを有するスルホニルウレア系化合物を含有する除草剤、あるいはそれとノビエ等に有効な除草剤活性成分の1種以上を有効成分として含有する水田用除草剤が使用されるようになつた。この様な水田除草剤は、水田雜草の発芽前ないしは発芽後生育期に施用して、一年生水田雜草、および従来満足しうる除草効果の達成が困難であった多年生水田雜草の両者に、顕著に優れた効果を發揮する。しかし、好ましくない条件下では、水稻に被害を与える場合がある。また、水田用の殺虫粒剤についても知られているが、殺虫活性成分と除草活性成分とを同時にひとつの粒剤に含有された水田用粒剤は、あまり知られていない。

## 【0003】

〔発明が解決しようとする課題〕 近年、水稻の分野においては、省力化および低コスト化が望まれている。1回の農薬粒剤の散布で主要な水稻害虫を防除するとともに、同時に水田雜草を長期間に渡って防除し、しかも水稻に被害の発生しない水田用粒剤の出現が要望されている。

## 【0004】

〔課題を解決するための手段〕 本発明は、

(1) 1-(6-クロロ-3-ピリジルメチル)-N-ニトロイミダゾリジン-2-イリデンアミン(以下、化合物(1)という)と、スルホニルウレア系化合物の1種以上とを有効成分として含有する有害生物防除用粒剤。

(2) 上記の第1項記載の有効成分と、ノビエ等に有効な除草剤活性成分の1種以上とを有効成分として含有する水田用粒剤。

(3) スルホニルウレア系化合物が、下記の4種の化合物のいずれかである上記の第1項記載の有害生物防除用粒剤。

【0005】① エチル-5-[3-(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)-ウレイドスルホニル]-1-メチルピラゾール-4-カルボキシレート(以下、化合物(2)という)。

② メチル=α(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イルカルバモイルスルファモイル)-0-トルアート(以下、化合物(3)という)。

③ 3-(4,6-ジメトキシ-1,3,5-トリアジン-2-イル)-1-[2-(2-メトキシエトキシ)-フェニルスルホニル]-ウレア(以下、化合物(4)という)。

④ 1-(2-クロロイミダゾ[1,2-a]ピリジン-3-イルスルホニル)-3-(4,6-ジメトキシ-2-ピリミジニル)ウレア(以下、化合物(5)といふ)。に関するものである。

【0006】本発明において、化合物(1)は特開昭61-287575号公報に記載された公知殺虫剤であり粒剤の形で、水稻の移植後に水中へ施用しても長時間の効力の持続が期待出来る。一方、化合物(2)～(5)

30 で示される化合物は、公知のスルホニルウレア系化合物であり、非常に低用量の水稻用除草剤で、単用で用いるか、またはノビエ等に有効な化合物との混合で用いることによって、1回の処理で長期間の雜草防除が可能な薬剤である。

【0007】本発明者等は、化合物(1)と、化合物(2)～(5)で示されるスルホニルウレア系化合物との混合粒剤を用いるか、またはこれらの化合物にさらにノビエ等に有効な化合物とを含む混合粒剤を用いることによって、1回の農薬粒剤の散布で主要な水稻害虫を防除するとともに同時に水田雜草を長期間に渡って防除することが可能な事を見出した。

【0008】さらに、通常条件の圃場条件では、化合物(2)～(5)で示されるスルホニルウレア系化合物、または下記に示すノビエ等に有効な薬剤は、優れた除草活性を發揮し、水稻に安全性が高い。しかし、水稻の土壤の性質、土壤の状態、気温、水温、天候条件、地域などによって、好ましくない条件下では水稻に被害を与える場合がある。

50 【0009】本発明者らは、上記の知見に基づき、化

物(1)の混用による効果、葉害について種々の検討を重ねた結果、化合物(1)を単独で使用したときの殺虫活性はそのままで、化合物(2)～(5)あるいはノビエ等に有効な下記薬剤をそれぞれ単独で使用したときの除草活性もそのまま発揮でき、かつ水稻に対するこれら除草剤による葉害が回避できることを見出した。すなわち、構成薬剤の殺虫効果、除草効果の実質的な低下を伴うことなく、化合物(1)により、水稻に対する葉害のみを選択的に顕著に軽減することができるという、選択的葉害低減効果が達成できることを見出し、本発明を完成させた。

【0010】本発明において、化合物(2)の一般名はピラゾスルフロンエチルで、化合物(3)の一般名はベンズルフロンメチルで、化合物(4)の一般名はシノスルフロンで、化合物(5)の一般名はイマゾスルフロンである。また、ノビエ等に有効な薬剤としては、例えば、以下にその例を述べる。

(1) 4-(2, 4-ジクロロベンゾイル)-1, 3-ジメチル-5-ピラゾリル-p-トルエンスルホネート  
(一般名: ピラゾレート)、(2) 2-[4-(2, 4-ジクロロベンゾイル)-1, 3-ジメチルピラゾール-5-イルオキシ]アセトフェノン(一般名: ピラゾキシン)、(3) 2-[4-(2, 4-ジクロロベンゾイル)-1, 3-ジメチルピラゾール-5-イルオキシ]-4-メチルアセトフェノン(一般名: ベンゾブエナップ)、(4) 1-( $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジル)-3-(バラトリル)尿素(一般名: ダイムロン)、(5) (RS)-2-プロモ-N-( $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジル)-3, 3-ジメチルブチルアミド(一般名: プロモブチド)、(6)  $\alpha$ -(2-ナフトキシ)プロピオニアニリド(一般名: ナプロアニリド)、(7) (RS)-2-(2, 4-ジクロロ-m-トリルオキシ)プロピオニアニリド(一般名: クロメプロップ)、(8) 2, 4, 6-トリクロルフェニル-4'-ニトロフェニルエーテル(一般名: CNP)、(9) 2, 4-ジクロルフェニル-3'-メトキシ-4'-ニトロフェニルエーテル(一般名: クロメトキシル)、(10) 5-(2, 4-ジクロルフェノキシ)-2-ニトロ安息香酸メチル(一般名: ピフェノックス)、(11) 5-ターシャリーブチル-3-(2, 4-ジクロル-5-イソプロポキシフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾリン-2-オン(一般名: オキサジアゾン)、(12) 2-ベンゾチアゾール-2-イルオキシ-N-メチルアセトアニリド(一般名: メフェナセット)、(13) 2-クロル-2'-6'-ジエチル-N-(ブロキシメチル)アセトアニリド(一般名: ブタクロール)、(14) S, S'-ジメチル-2-ジフルオルメチル-4-イソブチル-6-トリフルオルメチルビリジン-3, 5-ジカルボチオエート(一般名: ジチオビル)、(15) (Z)-N-ブト-2-エニルオキシメチル-2-クロロ-2', 6'-ジエチルアセトア

ニリド(一般名: ブテナクロール)、(16) 2-クロロ-2', 6'-ジエチル-N-(2-プロポキシエチル)アセトアニリド(一般名: プレチラクロール)、(17) 2-3-ジヒドロ-3, 3-ジメチルベンゾフラン-5-イル エタンスルホネート(一般名: ベンフレセート)、(18) O-3-ターシャリーブチルフェニル-6-メトキシ-2-ビリジル(メチル)チオカーバメイト(一般名: ビリブチカルブ)、(19) S-(4-クロルベンジル)-N, N-ジエチルチオカーバメート(一般名: ベンチオカーブ)、(20) S-1-メチル-1-フェニルエチル ピベリジン-1-カルボチアート(一般名: ジメビペレート)、(21) S-ベンジル 1, 2-ジメチルプロピル(エチル)チオカーバメート(一般名: エスプロカルブ)、(22) S-エチルヘキサヒドロ-1H-アゼビン-1-カルボチオエート(一般名: モリネート)、(23) O-エチル-O-(3-メチル-6-ニトロフェニル)セコンダリーブチルホスホロアミドチオエート(一般名: ブタミホス)、(24) 3, 7-ジクロロキノリン-8-カルボン酸(一般名: キンクロラック)、(25) (1RS, 2SR, 4SR)-1, 4-エボキシ-2-メンス-2-イル2-メチルベンジルエーテル(一般名: シンメチリン)、(26) 2-メチルチオ-4, 8-ビス(エチルアミノ)-S-トリアジン(一般名: シメトリン)、(27) O, O-ジイソプロピル-2-(ベンゼンスルホンアミド)エチルジチオホスフート(一般名: SAP)、(28) 2-メチルチオ-4-エチルアミノ-8-(1, 2-ジメチルプロピルアミノ)-S-トリアジン(一般名: ジメタメトリン)、(29) 2-メチルチオ-4, 8-ビス(イソプロピルアミノ)-S-トリアジン(一般名: プロメトリン)、(30) 2-アミノ-3-クロル-1, 4-ナフトキノン(一般名: ACN)、(31) 2-メチル-4-クロルフェノキシ酢酸(一般名: MCPB)、(32) 2-メチル-4-クロルフェノキシ酢酸(一般名: MCP)、(33) 2', 3'-ジクロロ-4-エトキシメトキシベンズアニリド、(34) 1-(2-クロロベンジル)-3-( $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジメチルベンジル)尿素、(35) N-[2'-(3'-メトキシ)-チエニルメチル]-N-クロロアセト-2, 6-ジメチルアニリド。

【0011】本発明における化合物(1)と化合物(2)～(5)の化合物の使用割合は、各々の剤の性能を実質的に損なわない範囲で適宜選択することが出来る。例えば、化合物(2)～(5)が、1重量部に対し、化合物(1)が、1～100重量部の範囲で、より望ましくは3～30重量部の範囲の使用割合がよい。上記のこれらの化合物にさらにノビエ等に有効である上記化合物を含む本発明の有害生物防除用粒剤を作るために、各種の助剤類を更に含有することができ、公知の手法に従って製剤することが出来る。助剤類としては、例えば

(4)

特開平5-139921

5  
固体担体、界面活性剤などが挙げられる。

〔0012〕 固体担体としては具体的に、カオリナイト、モンモリロナイト、珪藻土、ベントナイト、タルク、クレー、炭酸カルシウム、硫酸カルシウム、硫酸アンモニウム等が挙げられ、界面活性剤としては具体的に、アルキルベンゼンスルホン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリルエーテル、リグニスルホン酸塩、アルキルスルホコハク酸塩、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ナフタレンスルホン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリルエーテル硫酸塩、アルキルアミン塩、トリポリリン酸塩などが挙げられる。これら界面活性剤の含有量は、特に限定されるものではないが、本発明の粒剤 100重量部に対し、通常 0.05~20重量部の範囲が望ましい。また、必要に応じて、エポキシ化大豆油等の分解防止剤を本発明の粒剤に含有させてよい。

〔0013〕 次に、本発明の粒剤の配合実施例を具体的に記載するが、本発明はこれらののみに限定されるものではない。なお、以下の部は、重複部を意味する。

〔0014〕 配合実施例1

化合物(1)	1 部
化合物(2)	0.07 部
DBSN	3 部
エポキシ化大豆油	1 部
ベントナイト	30 部
タルク	64.93 部

以上を均一に混合粉碎して、少量の水を加え攪拌し、押出造粒機で造粒し、造粒後乾燥して粒剤を得た。

〔0015〕 なお、上記のDBSNは、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウムを意味するもので、以下の配合実施例においても同じである。

〔0016〕 配合実施例2

化合物(1)	1 部
化合物(2)	0.07 部
メフェナセット	3.5 部
DBSN	3 部
エポキシ化大豆油	1 部
ベントナイト	30 部
タルク	61.43 部

以上を均一に混合粉碎して、少量の水を加え攪拌し、押出造粒機で造粒し、造粒後乾燥して粒剤を得た。

〔0017〕 配合実施例3

化合物(1)	1 部
化合物(3)	0.17 部
メフェナセット	3.5 部
DBSN	3 部
エポキシ化大豆油	1 部
ベントナイト	30 部
タルク	61.33 部

以上を均一に混合粉碎して、少量の水を加え攪拌し、押出造粒機で造粒し、造粒後乾燥して粒剤を得た。

6

【0018】 配合実施例4

化合物(1)	1 部
化合物(4)	0.15 部
キンクロラック	0.7 部
ブレチラクロール	1 部
DBSN	3 部
エポキシ化大豆油	1 部
ベントナイト	30 部
タルク	63.15 部

10 以上を均一に混合粉碎して、少量の水を加え攪拌し、押出造粒機で造粒し、造粒後乾燥して粒剤を得た。

【0019】 配合実施例5

化合物(1)	1 部
化合物(5)	0.3 部
エスプロカルブ	7 部
ブレチラクロール	1.5 部
ジメタメトリン	0.2 部
DBSN	3 部
エポキシ化大豆油	1 部
ベントナイト	30 部
タルク	56 部

以上を均一に混合粉碎して、少量の水を加え攪拌し、押出造粒機で造粒し、造粒後乾燥して粒剤を得た。

【0020】 対照配合例1

化合物(2)	0.07 部
DBSN	3 部
エポキシ化大豆油	1 部
ベントナイト	30 部
タルク	65.93 部

30 以上を均一に混合粉碎して、少量の水を加え攪拌し、押出造粒機で造粒し、造粒後乾燥して粒剤を得た。

【0021】 対照配合例2

化合物(2)	0.07 部
メフェナセット	3.5 部
DBSN	3 部
エポキシ化大豆油	1 部
ベントナイト	30 部
タルク	62.43 部

以上を均一に混合粉碎して、少量の水を加え攪拌し、押出造粒機で造粒し、造粒後乾燥して粒剤を得た。

40 【0022】 対照配合例3

化合物(3)	0.17 部
メフェナセット	3.5 部
DBSN	3 部
エポキシ化大豆油	1 部
ベントナイト	30 部
タルク	62.33 部

以上を均一に混合粉碎して、少量の水を加え攪拌し、押出造粒機で造粒し、造粒後乾燥して粒剤を得た。

50 【0023】 対照配合例4

(5)

特開平5-139921

7

化合物(4)	-----	0.15 部
キンクロラック	-----	0.7 部
ブレチラクロール	-----	1 部
DBSN	-----	3 部
エポキシ化大豆油	-----	1 部
ペントナイト	-----	30 部
タルク	-----	64.15 部
以上を均一に混合粉碎して、少量の水を加え攪拌し、押出造粒機で造粒し、造粒後乾燥して粒剤を得た。		

## 【0024】対照配合例5

化合物(5)	-----	0.3 部
エスプロカルブ	-----	7 部
ブレチラクロール	-----	1.5 部
ジメタメトリル	-----	0.2 部
DBSN	-----	3 部
エポキシ化大豆油	-----	1 部
ペントナイト	-----	30 部
タルク	-----	57 部
以上を均一に混合粉碎して、少量の水を加え攪拌し、押出造粒機で造粒し、造粒後乾燥して粒剤を得た。		

## 【0025】対照配合例6

化合物(1)	-----	1 部
DBSN	-----	3 部 *

第1表 ツマグロヨコバイの死虫率(%)

施用粒剤 300g/7-4	放虫48時間後の死虫率(%)		
	処理7日後	処理21日後	処理45日後
配合実施例1の粒剤	100	100	100
配合実施例2の粒剤	100	100	100
配合実施例3の粒剤	100	100	100
配合実施例4の粒剤	100	100	100
配合実施例5の粒剤	100	100	100
対照配合例6の粒剤	100	100	100
無処理区	0	0	0

## 【0030】

第2表 ヒメトビウンカの死虫率(%)

施用粒剤 300g/7-4	放虫48時間後の死虫率(%)		
	処理7日後	処理21日後	処理45日後
配合実施例1の粒剤	100	100	100
配合実施例2の粒剤	100	100	100
配合実施例3の粒剤	100	100	100
配合実施例4の粒剤	100	100	100
配合実施例5の粒剤	100	100	100
対照配合例6の粒剤	100	100	100

(6)

特開平5~139921

10

無処理区

0

0

0

## 【0031】試験例2

1/5000 アールのワグネルボットに水田土壤を詰め水を注入し、代播き後、ノビエ、ホタルイ、コナギ、キカシグサを播種し、ウリカワねおよびミズガヤツリの塊茎を埋床した。そして、試験例1と同様の水稻稚苗をボット当たり2株定植し、温室内で生育させた。移植7日後に配合実施例1~5および対照配合例1~5の粒剤を1アーレル当り300g、600g、900gとなるように施用し、4cmの湛水深を、1日あたり2cmをボットの底部より減水し、その後、水を注入し4cmの湛水深にし、そして再び1日あたり2cmをボットの底部より減水し、その後再び水を注入し4cmの湛水深にし、以後\*

\*このままの状態にした。処理後30日目に下記の基準に従って各雑草及び水稻への影響を評価した。

## 判定基準

5	完全枯死あるいは90%以上の抑制
4	70~90%の抑制
3	40~70%の抑制
2	20~40%の抑制
1	5~20%の抑制

10 0 : 5%以下の抑制

抑制の程度は、肉眼による観察調査から求めた。結果を第3~7表に示す。

## 【0032】

第3表 除草効果及び水稻への影響

施用粒剤	粒剤の 処理量 (g/アール)	水 ノ ホ コ キ ウ ミ						
		稻	ビ	タ	ナ	カ	リ	ズ
配合実施例1 の粒剤	300	0	4	5	5	5	5	5
	600	0	4	5	5	5	5	5
	900	0	5	5	5	5	5	5
対照配合例1 の粒剤	300	0	4	5	5	5	5	5
	600	1	4	5	5	5	5	5
	900	2	5	5	5	5	5	5
無処理区		0	0	0	0	0	0	0

## 【0033】

第4表 除草効果及び水稻への影響

施用粒剤	粒剤の 処理量 (g/アール)	水 ノ ホ コ キ ウ ミ						
		稻	ビ	タ	ナ	カ	リ	ズ
配合実施例2 の粒剤	300	0	5	5	5	5	5	5
	600	0	5	5	5	5	5	5
	900	1	5	5	5	5	5	5
対照配合例2 の粒剤	300	0	5	5	5	5	5	5
	600	2	5	5	5	5	5	5
	900	3	5	5	5	5	5	5
無処理区		0	0	0	0	0	0	0

(7)

11

特開平5-139921

12

[0034]

第5表 除草効果及び水稻への影響

施用粒剤	粒剤の 処理量 (g/アール)	水 ノ ホ コ キ ウ ミ						
		稻	ビ	タ	ナ	カ	リ	ズ
配合実施例3 の粒剤	300	0	5	5	5	5	5	5
	600	1	5	5	5	5	5	5
	900	1	5	5	5	5	5	5
対照配合例3 の粒剤	300	0	5	5	5	5	5	5
	600	2	5	5	5	5	5	5
	900	3	5	5	5	5	5	5
無処理区		0	0	0	0	0	0	0

[0035]

第6表 除草効果及び水稻への影響

施用粒剤	粒剤の 処理量 (g/アール)	水 ノ ホ コ キ ウ ミ						
		稻	ビ	タ	ナ	カ	リ	ズ
配合実施例4 の粒剤	300	0	5	5	5	5	5	5
	600	1	5	5	5	5	5	5
	900	1	5	5	5	5	5	5
対照配合例4 の粒剤	300	1	5	5	5	5	5	5
	600	2	5	5	5	5	5	5
	900	3	5	5	5	5	5	5
無処理区		0	0	0	0	0	0	0

[0036]

40

第7表 除草効果及び水稻への影響

施用粒剤	粒剤の 処理量 (g/アール)	水 ノ ホ コ キ ウ ミ						
		稻	ビ	タ	ナ	カ	リ	ズ
配合実施例5	300	0	5	5	5	5	5	5

(8)

特開平5-139921

14

	13	600	1	5	5	5	5	5	5
の粒剤		900	1	5	5	5	5	5	5
対照配合例5		300	1	5	5	5	5	5	5
の粒剤		600	2	5	5	5	5	5	5
		900	3	5	5	5	5	5	5
無処理区			0	0	0	0	0	0	0

TRANSLATION

(19) JAPANESE PATENT OFFICE (JP)  
(12) Official Gazette for Kokai Patent Applications (A)  
(11) Japanese Patent Application Kokai Publication No. H5-139921  
(43) Kokai Publication Date: June 8, 1993

---

(51) Int. Cl. <sup>5</sup>	Ident. Symb.	Intrabureau No.	F1	Tech. Indic.
A 01 N 47/28	102	8930-4H		
25/12		6742-4H		
43/50		N 8930-4H		

Request for Examination: None submitted  
Number of Claims [3]  
(Total of 8 pages in the original Japanese)

---

(21) Application Filing No.	H3-295912
(22) Application Filing Date	November 12, 1991
(71) Applicant	000003986 Nissan Chemical Industries, Ltd. 7-1 Kanda Nishiki-cho 3-chome Chiyoda-ku, Tokyo
(72) Inventors	Koichi Suzuki Nissan Chemical Industries, Ltd., Bioscience Lab 1470 Oaza Shiraoka, Shiraoka-cho Saitama-gun, Saitama Prefecture
	Kenji Wakayama Nissan Chemical Industries, Ltd., Bioscience Lab 1470 Oaza Shiraoka, Shiraoka-cho Saitama-gun, Saitama Prefecture
	Toshiyuki Umehara Nissan Chemical Industries, Ltd., Bioscience Lab 1470 Oaza Shiraoka, Shiraoka-cho Saitama-gun, Saitama Prefecture

(54) [Title of the Invention]

Granules for Control of Harmful Organisms

(57) [Abstract]

**[Constitution]** Granules for the control of harmful organisms, said granules having as active ingredients a specified insecticide component and a sulfonylurea-based herbicidal component.

**[Advantageous Effects]** The present invention provides paddy rice field granules that control the principal insects harmful to paddy field rice with a single spraying of a granular pesticide and that simultaneously eliminate paddy rice field weeds for long periods of time, and moreover, that do not have phytotoxic effects on rice plants.

### [Claims of the Invention]

**[Claim 1]** Granules for control of harmful organisms, having as active ingredients 1-(6-chloro-3-pyridylmethyl-N-nitroimidazolidin-2-ylideneamine [hereinafter referred to as Compound (1)] and 1 or more sulfonylurea-based compounds.

**[Claim 2]** Paddy rice field granules containing the active ingredients recited in (1) above, and 1 or more herbicidally active ingredients effective against *Panicum crusgalli* and the like.

**[Claim 3]** Granules for control of harmful organisms recited in (1) above, wherein the sulfonylurea compound is any one of the 4 compounds given below.

- ① Ethyl-5-[3-(4,6-dimethoxypyrimidine-2-yl)-ureidosulfonyl]-1-methylpyrazole-4-carboxylate [hereinafter referred to as Compound (2)];
- ② Methyl- $\alpha$ -(4,6-dimethoxypyridine-2-yl-carbamoylsulfamoyl)-0-toluate (hereinafter referred to as Compound (3));
- ③ 3-(4,6-dimethoxy-1,3,5-triazine-2-yl)-1-[2-(2-methoxyethoxy)-phenylsulfonyl] urea [hereinafter referred to as Compound (4)];
- ④ 1-(2-chloroimidazo[1,2-a]pyridine-3-yl-sulfonyl)-3-(4,6-dimethoxy-2-pyrimidinyl) urea [hereinafter referred to as Compound (5)].

## **[Detailed Description of the Invention]**

### **[0001]**

**[Industrial Field of the Invention]** The present invention relates to novel granules for the control of harmful organisms, and in particular, to granules for use in paddy rice fields, said granules having as active ingredients a specified publicly-known insecticide component and a publicly-known herbicide component.

### **[0002]**

**[Prior Art]** In recent years, herbicides for paddy rice fields have come into use that have as their active ingredients herbicidal components such as herbicides containing sulfonylurea compounds that operate over a wide spectrum, being effective against both annual and perennial weeds in paddy rice fields, or one or more effective herbicidal component that works together with it, being effective against *Panicum crusgalli* and the like. Such paddy rice field herbicides operate in the growth periods before or after germination of paddy rice field weeds, and exhibit particularly outstanding effectiveness against both annual paddy rice field weeds and perennial paddy rice field weeds, for which it was difficult to achieve satisfactory herbicidal effect in the past. However, there are cases in which it has phytotoxic effects on rice plants, when used under unfavorable conditions. Furthermore, although insecticide granules for paddy rice field use are known, granules for paddy rice field use that simultaneously contain an insecticide component and a herbicide component are hardly known.

### **[0003]**

**[Problems to be Solved by the Invention]** In recent years, there has been an increasing desire to save labor and to reduce cost in the area of rice cultivation. There is a desire for paddy rice field granules that control the principal insects harmful to paddy field rice with a single spraying of a granular pesticide and that simultaneously eliminate paddy rice field weeds for long periods of time, and moreover, paddy rice field granules are desired that do not have phytotoxic effects on rice plants.

### **[0004]**

**[Means for Solving These Problems]** The present invention relates to

- (1) Granules for control of harmful organisms, having as active ingredients 1-(6-chloro-3-pyridylmethyl-N-nitroimidazolidin-2-ylideneamine [hereinafter referred to as Compound

- (1)] and 1 or more sulfonylurea compounds.
- (2) Paddy rice field granules containing the active ingredients recited in (1) above, and 1 or more herbicidally active ingredients effective against *Panicum crusgalli* and the like.
- (3) Granules for control of harmful organisms recited in (1) above, wherein the sulfonylurea compound is any one of the 4 compounds given below.

[0005] ① Ethyl-5-[3-(4,6-dimethoxypyrimidine-2-yl)-ureidosulfonyl]-1-methylpyrazole-4-carboxylate [hereinafter referred to as Compound (2)];  
② Methyl- $\alpha$ -(4,6-dimethoxypyridine-2-yl-carbamoylsulfamoyl)-0-toluate (hereinafter referred to as Compound (3));  
③ 3-(4,6-dimethoxy-1,3,5-triazine-2-yl)-1-[2-(2-methoxyethoxy)-phenylsulfonyl] urea [hereinafter referred to as Compound (4)];  
④ 1-(2-chloroimidazo[1,2-a]pyridine-3-yl-sulfonyl)-3-(4,6-dimethoxy-2-pyrimidinyl) urea [hereinafter referred to as Compound (5)].

[0006] In the present invention, Compound (1) is a publicly-known granular insecticide cited in Japanese Patent Application Kokai Publication No. S61-267575, which promises to have long-lasting efficacy even if applied in water after transplanting the paddy rice. On the other hand, the compounds represented by Compounds (2)-(5) are publicly-known sulfonylurea-based compounds, and are extremely low-dose herbicides for paddy rice, which can either be used alone, or in mixture with compounds that are effective against *Panicum crusgalli* and the like, and can control weeds for long periods of time, with one application.

[0007] The present inventors found that it is possible to control the principal insects harmful to paddy rice and at the same time to control paddy field weeds for long periods of time by a one-time spraying of either a granule mixture of Compound (1) and a sulfonylurea-based compound of Compounds (2)-(5), or said granule mixture containing an additional compound that is effective against *Panicum crusgalli* and the like.

[0008] Moreover, when used in agricultural fields under normal conditions, the sulfonylurea compounds represented by Compounds (2)-(5), or the below-mentioned compounds that are effective against *Panicum crusgalli* and the like, exhibit outstanding herbicidal activity, and very safe when used on rice plants. However, there are cases where they can have phytotoxic effects on rice plants under unfavorable conditions, depending on the quality and condition of the soil in the paddy field, as well as the temperature and humidity, the climate, the region, and so forth.

[0009] On the basis of the above findings, the present inventors discovered that the effects due to the mixing of Compound (1) and the results of careful research into the phytotoxicity show that the insecticide activity is the same as when Compound (1) is used alone, and that

the herbicidal effect is the same as when Compounds (2)-(5) or the below-mentioned compounds that are effective against *Panicum crusgalli* and the like are used alone, and phytotoxicity to rice plants due to the herbicide can be avoided. That is to say, the present inventors found that there is no substantial decrease in insecticidal effect or herbicidal effect of the pesticide structure, and that phytotoxicity to rice plants can be selectively and significantly reduced, making it possible to obtain a selective reduction in phytotoxic effect, thereby achieving the present invention.

[0010] The in present invention, the general name of Compound (2) is pyrazosulfuronethyl, the general name for Compound (3) is bensulfuronmethyl, the general name for Compound (4) is cinosulfuron, and the general name for Compound (5) is imazosulfuron. Furthermore, the following are examples of compounds that are effective against *Panicum crusgalli* and the like.

(1) 4-(2,4-dichlorobenzoyl)-1,3-dimethyl-5-pyrazolyl-*p*-toluenesulfonate (general name: Pyrazolate); (2) 2-4-(2,4-dichlorobenzoyl)-1,3-dimethylpyrazol-5-yloxyacetophenone (general name Pyrazoxyfen); (3) 2-[4-(2,4-dichloro-*m*-toluoyl)-1,3-dimethylpyrazol-5-yloxy]-4'-methylacetophenone (general name: Benzofenap); (4) 1-( $\alpha,\alpha$ -dimethylbenzyl)-3-(*p*-tolylurea) (general name: Dymuron); (5) (RS)-2-bromo-*N*( $\alpha,\alpha$ -dimethylbenzyl)3,3-dimethylbutylamide (general name: Bromobutid); (6)  $\alpha$ -(2-naphthoxy) propionanilid (general name: Naproanilide); (7) (RS)-2-(2,4-dichloro-*m*-tolyloxy) proprianilid (general name: Chromeprop); (8) 2,4,6-trichlorophenyl-4'-nitrophenoylether (general name: CNP); (9) 2,4-dichlorophenyl-3'-methoxy-4'-nitrophenoylether (general name: Chlormethoxinyl); (10) 5-(2,4-dichlorophenoxy)-2-nitromethylbenzoate (general name: Bifenox); (11) 5-*t*-butyl-3-(2,4-dichloro-5-isopropoxyphenyl)-1,3,4-oxadiazoline-2-one (general name: Oxadiazon); (12) 2-benzothiazole-2-yloxy-*N*-methylacetanilide (general name: Mephenacet); (13) 2-chloro-2'-6'-diethyl-*N*-(butoxymethyl) acetanilide (general name: Butachlor; (14) S,S'-dimethyl-2-diphenylolmethyl-4-isobutyl-6-trifluoromethylpyridine-3,5-dicarbothionate (general name: Dithiopyr); (15) (Z)-*N*-buto-2-enyloxymethyl-2-chloro-2',6'-diethylacetanilide (general name: Butenachlor); (16) 2-chloro-2',6'-diethyl-*N*-(2-propoxyethyl) acetoamide (general name: Pretilachlor); (17) 2-3-dihydro-3,3-dimethylbenzofuran-5-yl ethanesulfonate (general name: Benfuresate); (18) O-3-*tert*-butylphenyl-6-methoxy-2-pyridyl(methyl) thiocarbamate (general name: Pyributycarb); (19) S-(4-chlorobenzyl-*N,N*-diethylthiocarbamate (general name: Benthiocarb); (20) S-1-methyl-1-phenylethyl piperidine-1-carbothiate (general name: Dimepiperate); (21) S-benzyl-1,2-dimethylpropyl (ethyl) thiocarbamate (general name: Esprocarb); (22) S-ethylhexahydro-1*H*-azepin-1-carbothioate (general name: Molinate); (23) O-ethyl-O-(3-methyl-6-nitrophenyl)-sec-butylphosphoramido thioate (general name: Butamifos); (24) 3,7-dichloroquinoline-8-carboxylic acid (general name: Quinclorac); (25) (1*RS*, 2*SR*, 4*SR*)-1,4-epoxy-*p*-mens-2-yl-2-methylbenzylether (general name: Cinmethylin);

(26) 2-methylthio-4,6-bis(ethylamino)-*s*-triazine (general name: Simetryn); (27) O,O-diisopropyl-2-(benzenesulfonamide)ethyldithiophosphate (general name: SAP); (28) 2-methylthio-4-ethylamino-6-(1,2-dimethylpropylamino)-*S*-triazine (general name: Dimethametryn); (29) 2-methylthio-4,6-bis(isopropylamino)-*s*-triazine (general name: Prometryn); (30) 2-amino-3-chloro-1,4-naphthoquinone (general name: ACN); (31) 2-methyl-4-chlorophenoxybutyric acid (general name: MCPB); (32) 2-methyl-4-chlorophenoxyacetic acid (general name: MCP); (33) 2',3'-dichloro-4-ethoxymethoxybenzalide; (34) 1-(2-chlorobenzyl)-3-( $\alpha,\alpha$ -dimethylbenzyl)urea; (35) *N*-[2'-(3'-methoxy)-thienylmethyl]-*N*-chloroaceto-2,6-dimethylanilide.

[0011] The ratio of Compound (1) and Compounds (2)-(5) used in the present invention can be appropriately selected in ranges that do not substantially degrade the performance of the compounds. For example, a ratio of 1-100 parts by weight of Compound (1) per 1 part by weight of Compounds (2)-(5) is advantageous, and 3-30 parts by weight of more advantageous. Moreover, a suitable amount of a compound that is effective against *Panicum crusgalli* and the like can be mixed with the above-mentioned compounds. Moreover, various assistants can be added in order to produce granules for control of harmful organisms of the present invention that contain the above active ingredients, and they can be produced by publicly-known processes. Examples of assistants include solid carriers, surfactants, and the like.

[0012] Specific examples of solid carriers include kaolinite, montmorillonite, diatomaceous earth, bentonite, talc, clay, calcium carbonate, calcium sulfate, ammonium sulfate, and the like. Specific examples of surfactants include alkylbenzenesulfonic acid salt, polyoxyethylenealkylallylether, lignin sulfonic acid salt, alkylsulfosuccinic acid salt, polyoxyethylene fatty acid ester, naphthalenesulfonic acid salt, polyoxyethylene alkylallyl ether sulfuric acid salt, alkylamine salt, tripolyphosphate, and the like. There are no particular limitations on the amount of these surfactants used, but an advantageous range is typically 0.05-20 parts by weight per 100 parts by weight of granules. Furthermore, a decomposition inhibitor such as epoxidized soybean oil can be added to the granules of the present invention, as needed.

[0013] Specific examples of compositions of the granules of the present invention are given below, but the present invention is in no way limited to these alone. It should be noted that "parts" refers to parts by weight.

[0014] *Composition Example 1*

Compound (1)	1 part
Compound (2)	0.07 part

DBSN	3 parts
Epoxified soybean oil	1 part
Bentonite	30 parts
Talc	64.93 parts

The above were pulverized and mixed homogeneously, a small quantity of water was added and mixed, and granules were produced with an extrusion granulator, and the resulting granules were dried.

[0015] It should be noted that DBSN above refers to dodecylbenzene sodium sulfonate, as also below.

**[0016] *Composition Example 2***

Compound (1)	1 part
Compound (2)	0.07 part
Mphenacet	3.5 parts
DBSN	3 parts
Epoxified soybean oil	1 part
Bentonite	30 parts
Talc	61.43 parts

The above were pulverized and mixed homogeneously, a small quantity of water was added and mixed, and granules were produced with an extrusion granulator, and the resulting granules were dried.

**[0017] *Composition Example 3***

Compound (1)	1 part
Compound (3)	0.17 part
Mphenacet	3.5 parts
DBSN	3 parts
Epoxified soybean oil	1 part
Bentonite	30 parts
Talc	61.33 parts

The above were pulverized and mixed homogeneously, a small quantity of water was added and mixed, and granules were produced with an extrusion granulator, and the resulting granules are dried.

**[0018] *Composition Example 4***

Compound (1)	1 part
Compound (4)	0.15 part
Quinclorac	0.7 part
Pretilachlor	1 part
DBSN	3 parts
Epoxified soybean oil	1 part
Bentonite	30 parts
Talc	63.15 parts

The above were pulverized and mixed homogeneously, a small quantity of water was added and mixed, and granules were produced with an extrusion granulator, and the resulting granules were dried.

**[0019] *Composition Example 5***

Compound (1)	1 part
Compound (5)	0.3 part
Espocarb	7 parts
Pretilachlor	1.5 parts
Dimethatryn	0.2 part
DBSN	3 parts
Epoxified soybean oil	1 part
Bentonite	30 parts
Talc	56 parts

The above were pulverized and mixed homogeneously, a small quantity of water was added and mixed, and granules were produced with an extrusion granulator, and the resulting granules were dried.

**[0020] *Comparative Composition Example 1***

Compound (2)	0.07 part
DBSN	3 parts
Epoxified soybean oil	1 part
Bentonite	30 parts
Talc	65.93 parts

The above were pulverized and mixed homogeneously, a small quantity of water was added and mixed, and granules were produced with an extrusion granulator, and the resulting

granules were dried.

**[0021] Comparative Composition Example 2**

Compound (2)	0.07 part
Mephenacet	3.5 parts
DBSN	3 parts
Epoxified soybean oil	1 part
Bentonite	30 parts
Talc	62.43 parts

The above were pulverized and mixed homogeneously, a small quantity of water was added and mixed, and granules were produced with an extrusion granulator, and the resulting granules were dried.

**[0022] Comparative Composition Example 3**

Compound (3)	0.17 part
Mephenacet	3.5 parts
DBSN	3 parts
Epoxified soybean oil	1 part
Bentonite	30 parts
Talc	62.33 parts

The above were pulverized and mixed homogeneously, a small quantity of water was added and mixed, and granules were produced with an extrusion granulator, and the resulting granules were dried.

**[0023] Comparative Composition Example 4**

Compound (4)	0.15 part
Quinclorac	0.7 parts
Pretilachlor	1 part
DBSN	3 parts
Epoxified soybean oil	1 part
Bentonite	30 parts
Talc	64.15 parts

The above were pulverized and mixed homogeneously, a small quantity of water was added and mixed, and granules were produced with an extrusion granulator, and the resulting granules were dried.

**[0024] Comparative Composition Example 5**

Compound (5)	0.3 part
Esprocarb	7 parts
Pretilachlor	1.5 parts
Dimethametryn	0.2 part
DBSN	3 parts
Epoxified soybean oil	1 part
Bentonite	30 parts
Talc	57 parts

The above were pulverized and mixed homogeneously, a small quantity of water was added and mixed, and granules were produced with an extrusion granulator, and the resulting granules were dried.

**[0025] Comparative Composition Example 6**

Compound (1)	1 part
DBSN	3 parts
Epoxified soybean oil	1 part
Bentonite	30 parts
Talc	65 parts

The above were pulverized and mixed homogeneously, a small quantity of water was added and mixed, and granules were produced with an extrusion granulator, and the resulting granules were dried.

**[0026]** Next, insecticidal efficacy tests and herbicidal efficacy tests were conducted using the grains of the present invention obtained in Composition Examples 1-5.

**[0027] Test Example 1**

Seedlings (2.5 leaves; Variety: Nihonbare) grown in seedling boxes were transferred and cut, and paddy field soil and water were added, and the seedlings were transferred to a 1/10,000 are pot. Seven days after transplantation, granules produced in Composition Examples 1-5 and Comparative Example 6 were applied to the surface of the water at 300 g per are.

**[0028]** Then, 7, 21, and 45 days after application of the granules, a polyethylene cylinder was placed among the growing rice plants, and organophosphate-resistant and carbamate-

resistance leafhoppers and *himetobiunka* insects were placed at 10 per pot, and after 48 hours, the mortality rate was investigated. The results are given in Table 1 and Table 2.

### [0029]

**Table 1 Mortality Rate of Leafhoppers (%)**

Granules applied 300 g/are	Mortality rate after 48 hours (%)		
	7 days after treatment	21 days after treatment	45 days after treatment
Composit. Ex. 1	100	100	100
Composit. Ex. 2	100	100	100
Composit. Ex. 3	100	100	100
Composit. Ex. 4	100	100	100
Composit. Ex. 5	100	100	100
Composit. Ex. 6	100	100	100
Untreated groups	0	0	0

### [0030]

**Table 2 Mortality Rate of *Himetobiunka* Insects (%)**

Granules applied 300 g/are	Mortality rate after 48 hours (%)		
	7 days after treatment	21 days after treatment	45 days after treatment
Composit. Ex. 1	100	100	100
Composit. Ex. 2	100	100	100
Composit. Ex. 3	100	100	100
Composit. Ex. 4	100	100	100
Composit. Ex. 5	100	100	100
Composit. Ex. 6	100	100	100
Untreated groups	0	0	0

### [0031] Test Example 1

A 1/5000 *are* Wagner pot was filled with paddy field soil, water was added, and raking was carried out, and then *Panicum crusgalli*, *Scirpus*, *Monochoria*, *kikashi* grass were sown, and *urikawa* and *mizugayatsuri* tubers were planted. The same type of rice seedlings as in Test Example 1 were planted in a pot, and grown in a hot room. Seven days after transplanting, 300 g, 600 g, and 900 g per *are* of the granules of Composition Examples 1-5 and Comparative Composition Examples 1-5 were applied, and 2 cm of water per day was let out of the bottom of a 4 cm brimming pot, after which water was injected to refill it to 4 cm, and again 2 cm per day was let out of the bottom of the pot, after which water was injected again,

to fill the pot, whereinafter it was left as is. The effect on the weeds and on the rice was evaluated 30 days after treatment in accordance with the following criteria.

5 : Plants completely dead or controlled 90% or more

4 : 70-90% controlled

3 : 40-70% controlled

2 : 20-40% controlled

1 : 5-20% controlled

0 : 5% or less controlled

The degree of control was determined by visual observation. The results are given in Tables 3-7.

### [0032]

**Table 3. Herbicidal Effect and Effect on Rice Plants**

Granules	Granule Treatment Amount (g/are)	Rice Plants	<i>Panicum crusgalli</i>	<i>Scirpus</i>	<i>Monochoria</i>	Kikashi grass	Urikawa	Mizugayatsuri
Composit	300	0	4	5	5	5	5	5
Ex. 1	600	0	4	5	5	5	5	5
Granules	900	0	5	5	5	5	5	5
Compar.	300	0	4	5	5	5	5	5
Composit	600	1	4	5	5	5	5	5
Ex. 1	900	2	5	5	5	5	5	5
Granules								
Untreated groups		0	0	0	0	0	0	0

### [0033]

**Table 4. Herbicidal Effect and Effect on Rice Plants**

Granules	Granule Treatment Amount (g/are)	Rice Plants	<i>Panicum crusgalli</i>	<i>Scirpus</i>	<i>Monochoria</i>	Kikashi grass	Urikawa	Mizugayatsuri
Composit	300	0	5	5	5	5	5	5
Ex. 2	600	0	5	5	5	5	5	5
Granules	900	1	5	5	5	5	5	5
Compar.	300	0	5	5	5	5	5	5
Composit	600	2	5	5	5	5	5	5
Ex. 2	900	3	5	5	5	5	5	5
Granules								
Untreated groups		0	0	0	0	0	0	0

[0034]

Table 5. Herbicidal Effect and Effect on Rice Plants

Granules	Granule Treatment Amount (g/are)	Rice Plants	<i>Panicum crusgalli</i>	<i>Scirpus</i>	<i>Monochoria</i>	Kikashi grass	Urikawa	Mizugayatsuri
Composit	300	0	5	5	5	5	5	5
Ex. 3	600	1	5	5	5	5	5	5
Granules	900	1	5	5	5	5	5	5
Compar.	300	0	5	5	5	5	5	5
Composit	600	2	5	5	5	5	5	5
Ex. 3	900	3	5	5	5	5	5	5
Granules								
Untreated groups		0	0	0	0	0	0	0

[0035]

Table 6. Herbicidal Effect and Effect on Rice Plants

Granules	Granule Treatment Amount (g/are)	Rice Plants	<i>Panicum crusgalli</i>	<i>Scirpus</i>	<i>Monochoria</i>	Kikashi grass	Urikawa	Mizugayatsuri
Composit	300	0	5	5	5	5	5	5
Ex. 4	600	1	5	5	5	5	5	5
Granules	900	1	5	5	5	5	5	5
Compar.	300	1	5	5	5	5	5	5
Composit	600	2	5	5	5	5	5	5
Ex. 4	900	3	5	5	5	5	5	5
Granules								
Untreated groups		0	0	0	0	0	0	0

[0036]

Table 7. Herbicidal Effect and Effect on Rice Plants

Granules	Granule Treatment Amount (g/are)	Rice Plants	<i>Panicum crusgalli</i>	<i>Scirpus</i>	<i>Monochoria</i>	Kikashi grass	Urikawa	Mizugayatsuri
Composit	300	0	5	5	5	5	5	5
Ex. 5	600	1	5	5	5	5	5	5
Granules	900	1	5	5	5	5	5	5
Compar.	300	1	5	5	5	5	5	5
Composit	600	2	5	5	5	5	5	5
Ex. 5	900	3	5	5	5	5	5	5
Granules								
Untreated groups		0	0	0	0	0	0	0

*Translated by John F. Bukacek (773/508-0352)*